



## Méthodes numériques avancées pour les problèmes à forte raideur en transport réactif

### Équipe d'encadrement :

- *Directeurs :*
  - Clément Cancès (Inria Lille – Nord Europe, clement.cances@inria.fr)
  - Quang-Huy Tran (IFPEN, quang-huy.tran@ifpen.fr)
- *Promoteurs :*
  - Ibtihel Ben Gharbia (IFPEN, ibtihel.ben-gharbia@ifpen.fr)
  - Thibault Faney (IFPEN, thibault.faney@ifpen.fr)

### Localisation :

Le doctorant sera employé sur contrat doctoral Inria (environ 2000€ brut par mois). Il sera principalement hébergé à IFPEN (Rueil-Malmaison) et passera 6 mois au centre Inria Lille – Nord Europe sur les trois ans fractionnés en plusieurs séjours.

### Contexte scientifique :

La simulation du transport réactif en milieu poreux est un enjeu majeur pour de nombreux projets IFPEN (stockage de CO<sub>2</sub>, combustion dans les moteurs et turbines à gaz ou encore design de réacteurs chimiques pour les procédés). Malheureusement, la performance des codes de transport réactif est aujourd'hui fortement limitée par les difficultés numériques liées à la modélisation chimique. Ces difficultés apparaissent sous des façades variées, mais toutes peuvent se rattacher à un problème de raideur des équations à résoudre.

En modélisation chimique, on distingue deux catégories de réactions : les réactions d'équilibre et les réactions cinétiques. Les réactions d'équilibre qui impliquent une phase minérale sont modélisées par des conditions de complémentarité [6]. En soi, l'utilisation de cet outil est une avancée majeure permettant de traiter de manière unifiée le va-et-vient entre le régime sous-saturé (où le minéral ne se forme pas) et le régime saturé (où l'équilibre chimique a lieu). Or, la non-différentiabilité des conditions de complémentarité met en défaut les solveurs non-linéaires utilisés traditionnellement à IFPEN, comme la méthode de Newton. On est alors obligé d'utiliser une version semi-lisse, laquelle exhibe des comportements cycliques indésirables sur la plupart des cas difficiles. Dans ces conditions, le premier défi à relever est d'élaborer une méthode numérique de résolution des systèmes d'équations algébriques contenant des conditions de complémentarité, avec une meilleure garantie de convergence.

Les réactions à l'équilibre considérées recouvrent aussi une large gamme de valeurs du domaine de définition des inconnues, avec des plages de fonctionnement et des ordres de grandeurs tout à fait différents. Cela pose des problèmes de préconditionnement à lever plage-par-plage. Tantôt il est préférable de choisir comme inconnues les nombres de moles des espèces ; tantôt il est souhaitable de prendre leurs logarithmes, sous peine de faire « exploser » les calculs. Le choix de variables judicieusement adaptées aux plages de

fonctionnement, quelle que soit la méthode de résolution numérique employée, constitue le deuxième verrou que nous devons lever.

Dans l'autre catégorie, les réactions cinétiques font explicitement intervenir l'évolution temporelle des concentrations, avec toutefois des temps caractéristiques très différents. Une réaction est dite « raide » lorsqu'elle atteint l'équilibre très rapidement, en un temps beaucoup plus petit que le pas de temps qui proviendrait uniquement de la partie transport. Pour bien prendre en compte les réactions cinétiques raides, il est nécessaire de développer des solveurs d'équations différentielles ordinaires adaptés. Ce problème a fait l'objet de beaucoup de recherches dans le passé à IFPEN. Cependant, de nouveaux projets IFPEN demandent une modélisation des interactions chimiques toujours plus complexe (influence de la température pour les projets liés à la géothermie, réactions microbiologiques pour le stockage d'hydrogène) faisant apparaître de nouveaux types de réactions cinétiques, pour lesquelles il est essentiel de concevoir de nouvelles méthodes numériques. C'est la troisième tâche qui nous attend.

Le quatrième et dernier volet que nous proposons d'incorporer dans les objectifs de cette thèse concerne le traitement du pas de temps. En effet, le modèle de transport réactif dans son ensemble est discrétisé par un schéma implicite en temps, ce qui conduit à la résolution d'un grand système non-linéaire à chaque pas de temps. Plus ce pas de temps est grand, plus le système est difficile à résoudre, compte-tenu des non-linéarités présentes dans les termes de transport et ceux de réaction. Nous souhaitons améliorer la convergence du solveur non-linéaire pour les grands pas de temps. Ce point rejoint certes le premier défi, mais diffère de celui-ci en ce que nous cherchons à reformuler le système différemment de sorte à faire apparaître des instants intermédiaires.

### **État de l'art, pistes envisagées, originalité**

Les quatre difficultés que nous voulons aborder s'inscrivent en réalité sous une thématique unifiée : la raideur. Les développements récents en matière de méthodes numériques nous laissent entrevoir l'espoir de mieux maîtriser numériquement les manifestations variées de la raideur dans les modèles de transport réactif. Notons que nous ne sommes pas seuls à avoir cet espoir : plusieurs autres laboratoires industriels ou académiques comme l'Andra, le BRGM, le CEA, l'Inria ou encore l'Université de Nice ont exprimé le même intérêt pour ce type de problème dans le contexte d'autres applications. Un projet collaboratif est d'ailleurs en cours de montage entre IFPEN et ces organismes, ce qui met en lumière le caractère « transverse » du sujet.

L'étude des méthodes numériques pour les systèmes contenant des conditions de complémentarité, objet du premier défi, a démarré dans la thèse de Duc Thach Son VU (IFPEN, 2017-2020), dont l'application principale était le problème de l'équilibre des phases en thermodynamique. En guise d'alternative à Newton-min, la méthode par défaut dans les prototypes IFPEN, il a été développé un nouvel algorithme [9] appelé NIPM (*nonparametric interior-point method*). Il s'agit d'une variante des méthodes de points intérieurs, dans laquelle le paramètre de régularisation n'a pas à être « piloté manuellement » pour tendre vers 0. NIPM fournit d'excellents résultats et surpasse Newton-min sur des petits cas. Elle n'est cependant pas complètement aboutie, car sur des grands cas elle est équivalente à Newton-min. Il y a donc encore une réflexion à entreprendre sur NIPM, notamment en

rapport avec le choix du point initial dans la région intérieure à chaque pas de temps pour les problèmes d'évolution.

La présence des échelles de grandeur très différentes, obligeant à prendre tantôt les nombres de moles comme inconnues tantôt leurs logarithmes, est un problème de même nature que celui étudié par Sabrina BASSETTO (IFPEN, 2019-2022) dans sa thèse, où selon la zone où l'on se trouve sur la courbe de pression capillaire, il faut prendre soit la pression soit la saturation comme inconnue principale. Pour basculer automatiquement d'un régime à l'autre tout en veillant à ce que les dérivées partielles de la matrice jacobienne restent bornées, la méthode de paramétrage de Brenner-Cancès [3] a été retenue. Appliquée à l'équation de Richards puis à un système diphasique avec des lois capillaires très raides comme Van Genuchten, elle donne des résultats bien meilleurs que ceux de la méthode de Casulli-Zanolli [5]. Toutefois, on est encore loin de l'objectif ultime qui est d'apporter la robustesse sur toute la gamme possible des saturations. À la place de la méthode de paramétrage, il y a encore par exemple la « représentation cartésienne équilibrée », une idée que nous nourrissons depuis quelque temps, ou les stratégies de préconditionnement non-linéaire à gauche et à droite, proposées récemment par Brenner [2], qui partagent quelques traits communs avec la représentation cartésienne équilibrée. Ces pistes ne seront pas explorées dans le cadre de la thèse en question.

Les réactions cinétiques ont jadis suscité de nombreux travaux à IFPEN, notamment en réduction cinétique (où les réactions rapides sont considérées comme instantanées, c'est-à-dire ayant des vitesses infinies) en rapport avec les méthodes numériques pour les systèmes algèbro-différentiels. Les nouveaux modèles microbiologiques permettront certainement de les raviver. Cependant, la voie que nous souhaitons suivre en premier lieu est celle d'une nouvelle famille de méthodes qui exploitent la structure gradient sous-jacente, mise en évidence par Mielke [8]. Ces dernières années, en effet, il est apparu que pour les modèles physiques admettant une structure gradient, comme certains modèles diphasiques en milieu poreux étudiés par Cancès et al. [4], on peut élaborer des schémas ayant des propriétés de décroissance d'énergie qui sont très favorables à la convergence. Une nouveauté dans les réactions cinétiques que nous considérons réside dans les modèles à cinétique limitée, exprimés à nouveau avec des conditions de complémentarité. Ces modèles ont été introduit dans la thèse Bastien HAMLAT (IFPEN, 2016-2019) sans que la question des méthodes numériques appropriées ait été abordée [7].

Enfin, le traitement d'un grand pas de temps par des itérations qui correspondent chacune à un temps intermédiaire a été suggéré par Younis et al. [10] en tant que méthode de continuation homotopique sur la base de Newton. Bien que les améliorées prétendues soient spectaculaires, l'implémentation de la méthode demeure difficile. Nous proposons une nouvelle façon de voir qui permet de simplifier notablement l'approche de Younis et al.

En résumé, ce sujet constitue le prolongement naturel de trois thèses antérieures, dont il synthétise et perfectionne les outils en vue d'une nouvelle et plus ambitieuse application qu'est le transport réactif.

## **Bibliographie**

- [1] S. BASSETTO, C. CANCES, G. ENCHERY, Q. H. TRAN. Robust Newton Solver Based on Variable Switch for a Finite Volume Discretization of Richards Equation, *Finite Volumes and Complex Applications IX -- Methods, Theoretical Aspects, Examples*, R. Klöfkorn, E. Keilegavlen, F. A. Radu, J. Fuhrmann, eds, 2020, 395–403, Springer, Cham. [doi:10.1007/978-3-030-43651-3\\_35](https://doi.org/10.1007/978-3-030-43651-3_35)
- [2] K. BRENNER. Acceleration of Newton’s method using nonlinear Jacobi preconditioning, *Finite Volumes and Complex Applications IX -- Methods, Theoretical Aspects, Examples*, R. Klöfkorn, E. Keilegavlen, F. A. Radu, J. Fuhrmann, eds, 2020, 395–403, Springer, Cham. [doi:10.1007/978-3-030-43651-3\\_36](https://doi.org/10.1007/978-3-030-43651-3_36)
- [3] K. BRENNER, C. CANCES. Improving Newton’s method performance by parametrization: the case of the Richards equation, *SIAM J. Numer. Anal.* **55** (2017), 1760–1785. [doi:10.1137/16M1083414](https://doi.org/10.1137/16M1083414)
- [4] C. CANCES, T. O. GALLOUËT, L. MONSAINGEON. Incompressible immiscible multiphase flows in porous media: a variational approach, *Anal. PDE* **10** (2017), 1845–1876. [doi:10.2140/apde.2017.10.1845](https://doi.org/10.2140/apde.2017.10.1845)
- [5] V. CASULLI, P. ZANOLLI. Iterative solutions of mildly nonlinear systems, *J. Comput. Appl. Math.* **236** (2012), 3937–3947. [doi:10.1016/j.cam.2012.02.042](https://doi.org/10.1016/j.cam.2012.02.042)
- [6] T. FANEY. *System of equations in ArXim*, technical note, IFPEN, April 2020.
- [7] B. HAMLAT, J. ERHEL, A. MICHEL, T. FANEY. Modélisation des systèmes cinétiques limités, *8e Biennale Française des Mathématiques Appliquées et Industrielles*, SMAI, La Tremblade, June 2017.
- [8] A. MIELKE. A gradient structure for reaction-diffusion systems and for energy-drift-diffusion systems, *Nonlinearity* **24** (2011), pp. 1329–1346. [10.1088/0951-7715/24/4/016](https://doi.org/10.1088/0951-7715/24/4/016)
- [9] D. T. S. VU, I. BEN GHARBI, M. HADDOU, Q. H. TRAN. A new strategy for solving nonlinear complementarity problems arising in thermodynamics of compositional multiphase mixtures, *6th World Congress on Global Optimization*, Metz, July 2019.
- [10] R. M. YOUNIS, H. A. TCHELEPI, K. AZIZ. Adaptively localized continuation-Newton method–Nonlinear solvers that converge all the time, *SPE Journal* **15** (2010), 526–544. [doi:10.2118/119147-PA](https://doi.org/10.2118/119147-PA)